# 日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 Date of Application:

2002年12月24日

出 願 番 号 Application Number:

特願2002-372362

[ST. 10/C]:

[JP2002-372362]

出 願 Applicant(s):

京セラ株式会社

2003年 9月19日

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office 今井康



62013US/FP1468

【書類名】 特許願

【整理番号】 28116

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明者】

【住所又は居所】 鹿児島県国分市山下町1番1号 京セラ株式会社鹿児島

国分工場内

【氏名】 宮尾 貴幸

【発明者】

【住所又は居所】 鹿児島県国分市山下町1番1号 京セラ株式会社鹿児島

国分工場内

【発明者】

【住所又は居所】 鹿児島県国分市山下町1番1号 京セラ株式会社鹿児島

国分工場内

【氏名】 佐多 明史

【特許出願人】

【識別番号】 000006633

【住所又は居所】 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地

【氏名又は名称】 京セラ株式会社

【代表者】 西口 泰夫

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 005337

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

## 【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用容器および燃料電池

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 板状の固体電解質の下側主面に第1電極および上側主面に第2電極がそれぞれ前記固体電解質が周囲に張り出すように形成された電解質部材の少なくとも前記第1電極を内部に収容するとともに外周部に前記固体電解質の張出部を載置する載置部を有する第1凹部を上面に有するセラミックスから成る基体と、前記電解質部材の前記下側主面に対向する前記第1凹部の底面から前記基体の外面にかけて形成された第1流体流路と、前記電解質部材の前記第1電極に対向する前記第1凹部の底面に一端が配設され、他端が前記基体の外面に導出された第1配線導体と、前記基体の前記第1凹部の周囲の上面に前記第1凹部を覆って取着される、前記第2電極を収容するとともに外周部に前記張出部に当接して前記載置部との間に前記張出部を挟持する当接部を有する第2凹部を下面に有する、前記第1凹部を気密に封止する蓋体と、前記電解質部材の前記上側主面に対向する前記蓋体の下面から前記蓋体の外面にかけて形成された第2流体流路と、前記電解質部材の前記第2電極に対向する前記蓋体の下面に一端が配設され、他端が前記蓋体の外面に導出された第2配線導体とを具備することを特徴とする燃料電池用容器。

【請求項2】 板状の固体電解質の下側主面に第1電極および上側主面に第2電極がそれぞれ前記固体電解質が周囲に張り出すように形成された電解質部材の少なくとも前記第1電極を内部に収容するとともに外周部に前記固体電解質の張出部を載置する載置部を有する凹部を上面に有するセラミックスから成る基体と、前記電解質部材の前記下側主面に対向する前記凹部の底面から前記基体の外面にかけて形成された第1流体流路と、前記電解質部材の前記第1電極に対向する前記凹部の底面に一端が配設され、他端が前記基体の外面に導出された第1配線導体と、前記基体の前記凹部の周囲の上面に前記凹部を覆って取着される、前記凹部を気密に封止する蓋体と、前記電解質部材の前記上側主面に対向する前記蓋体の下面から前記蓋体の外面にかけて形成された第2流体流路と、前記電解質部材の前記第2電極に対向する前記蓋体の下面に一端が配設され、他端が前記蓋体

の外面に導出された第2配線導体とを具備することを特徴とする燃料電池用容器。

【請求項3】 請求項1または請求項2記載の燃料電池用容器の前記載置部に 電解質部材を載置して、該電解質部材の前記下側および上側主面を前記第1およ び第2流体流路との間でそれぞれの流体がやりとり可能なように配置するととも に、前記第1および第2電極を前記第1および第2配線導体にそれぞれ電気的に 接続し、前記基体の前記第1凹部または前記凹部の周囲の上面に前記第1凹部ま たは前記凹部を覆って前記蓋体を取着して成ることを特徴とする燃料電池。

# 【発明の詳細な説明】

 $[0\ 0\ 0\ 1]$ 

## 【発明の属する技術分野】

本発明は、電解質部材を収容可能なセラミックスから成る小型で高信頼性の燃料電池用容器およびそれを用いた燃料電池に関するものである。

[00002]

## 【従来の技術】

近年、これまでよりも低温で動作する小型燃料電池の開発が活発になされている。燃料電池には、これに用いる電解質の種類により、固体高分子電解質型燃料電池(Polymer Electrolyte Fuel Cell:以下、PEFCと記す)やリン酸型燃料電池、あるいは固体電解質型燃料電池といったものが知られている。

[0003]

中でもPEFCは、作動温度が80~100℃程度という低温であり、

- (1) 出力密度が高く、小型化・軽量化が可能である、
- (2) 電解質が腐食性でなく、しかも作動温度が低いため、耐食性の面から電池 構成材料の制約が少ないので、コスト低減が容易である、
  - (3) 常温で起動できるため、起動時間が短い、

といった優れた特長を有している。このためPEFCは、以上のような特長を活かして、車両用の駆動電源や家庭用のコジェネレーションシステム等への適用ばかりでなく、携帯電話・PDA (Personal Digital Assistants)・ノートパソコン・デジタルカメラやビデオ等の出力が数W~数十Wの携帯電子機器用の電源

としての用途が考えられてきている。

## [0004]

PEFCは、大別して、例えば、白金や白金ールテニウム等の触媒微粒子が付着した炭素電極から成る燃料極(カソード)と、白金等の触媒微粒子が付着した炭素電極から成る空気極(アノード)と、燃料極と空気極との間に介装されたフィルム状の電解質部材(以下、電解質部材と記す)とを有して構成されている。ここで、燃料極には、改質部を介して抽出された水素ガス( $H_2$ )が供給され、一方、空気極には、大気中の酸素ガス( $O_2$ )が供給されることにより、電気化学反応により所定の電気エネルギーが生成(発電)され、負荷に対する駆動電源(電圧/電流)となる電気エネルギーが生成される。

#### [0005]

具体的には、燃料極に水素ガス( $H_2$ )が供給されると、次の化学反応式(1)に示すように、上記触媒により電子( $e^-$ )が分離した水素イオン(プロトン; $H^+$ )が発生し、電解質部材を介して空気極側に通過するとともに、燃料極を構成する炭素電極により電子( $e^-$ )が取り出されて負荷に供給される。

 $3 H_2 \rightarrow 6 H^+ + 6 e^- \cdot \cdot \cdot (1)$ 

一方、空気極に空気が供給されると、次の化学反応式(2)に示すように、上記触媒により負荷を経由した電子  $(e^-)$  と電解質部材を通過した水素イオン  $(H^+)$  と空気中の酸素ガス  $(O_2)$  とが反応して水  $(H_2O)$  が生成される。

 $6 \text{ H}^+ + 3 / 2 \text{ O}_2 + 6 \text{ e}^- \rightarrow 3 \text{ H}_2 \text{ O} \cdot \cdot \cdot (2)$ 

このような一連の電気化学反応(式(1)および式(2))は、概ね80~100  $\mathbb C$ の比較的低温の温度条件で進行し、電力以外の副生成物は基本的に水( $\mathbf H_2$  O ) のみとなる。

#### [0008]

電解質部材を構成するイオン導電膜(交換膜)は、スルホン酸基を持つポリスチレン系の陽イオン交換膜、フルオロカーボンスルホン酸とポリビニリデンフルオライドとの混合膜、フルオロカーボンマトリックスにトリフルオロエチレンを

グラフト化したもの等が知られており、最近ではパーフルオロカーボンスルホン 酸膜(例えばナフィオン:商品名、デュポン社製)等が用いられている。

[0009]

図3に、従来の燃料電池(PEFC)の構成を断面図で示す。同図において、41はPEFC、43は電解質部材、44および45は電解質部材を挟持するように電解質部材43上に配置され、ガス拡散層および触媒層としての機能を有する一対の多孔質電極、すなわち燃料極および空気極であり、46はガスセパレータ、48は燃料流路、49は空気流路である。

[0010]

ガスセパレータ46は、ガスセパレータ46の外形を形成する積層部およびガス流入出枠と、燃料流路48と空気流路49とを分離するセパレータ部と、このセパレータ部を貫通するように設けられた、電解質部材43の燃料極44および空気極45に対応するように配置された電極とから構成されている。電解質部材43の燃料極44、空気極45が電気的に直列および/または並列に接続されるようにガスセパレータ46を介して多数積層して電池の最小単位である燃料電池スタックとし、この燃料電池スタックを箱体に収納したものが一般的なPEFC本体である。

[0011]

ガスセパレータ46に形成された燃料流路48を通して燃料極44には改質器から水蒸気を含む燃料ガス(水素に富むガス)が供給され、また、空気極45には空気流路49を通して大気中から酸化剤ガスとして空気が供給され、電解質部材43での化学反応により発電される。

[0012]

〔特許文献1〕

特開2001-266910号公報

〔特許文献2〕

特表2001-507501号公報

[0013]

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、このような高電圧・高容量の電池として従来より提案され開発

されている燃料電池41は、スタック構造を有し構成要素が大面積化された大重量で大型の電池であり、小型電池としての燃料電池の利用は、従来はほとんど考えられていなかった。

# [0014]

すなわち、このような燃料電池41における従来のガスセパレータ46には、これを用いて電解質部材43を積層した積層体において、電解質部材43の側面が外部に露出していることによって、携帯時の落下等により損傷を受けやすく、燃料電池41全体の機械的信頼性を確保し難いという問題点があった。

## [0015]

また、携帯電子機器に燃料電池41を搭載するためには、従来の大型燃料電池用容器が必要になる。すなわち、汎用の化学電池のようなポータブル電源として適用するためには、作動温度までの温度上昇を短時間化するために、また熱容量を小さくするために、燃料電池用容器を小型化・低背化する必要があるが、従来の燃料電池41では熱容量の割合の大部分を占めるガスセパレータ46は、特にカーボン板の表面に切削加工で流路形成されるガスセパレータ46の場合など、薄肉化すると脆くなるため、数mmの厚みが必要である。このため、小型化・低背化が困難であるという問題点もあった。

#### $[0\ 0\ 1\ 6]$

さらに、燃料電池41の出力電圧は、電解質部材43の表裏面の各電極44・45に供給されるガスの分圧によって決まる。すなわち、電解質部材43に供給された燃料ガスがガス流路48を進んで発電反応において消費されると、燃料極44の面上の燃料ガスの分圧が下がって出力電圧が下がる。これと同様に、空気も空気流路49を進んで消費されると、空気極45の面上の酸素の分圧が下がって出力電圧が下がる。従って、燃料ガスを均等に供給する必要があるが、従来の燃料電池41のガスセパレータ46は、特にカーボン板の表面に切削加工により流路を形成していることから、薄型化したときには流路の溝が狭くなるため、流路抵抗が大きくなり、均一なガス供給が困難であるという問題点もあった。

## [0017]

6/

また、複数の電解質部材43とその対向する燃料極44・空気極45とガスセパレータ46との組み合わせが、任意に効率よく直列接続または並列接続されて、全体の出力電圧および出力電流が調整されるようにする必要があるが、従来の燃料電池41では電解質部材43を挟む燃料極および空気極から電気を取り出すためには、外部に引き出し接続する方法か、もしくはガスセパレータ46を導電性材料として重ね合わせ直列接続する方法しかなく、小型燃料電池においてはそれが困難であるという問題点もあった。

#### [0018]

本発明は以上のような従来の技術の問題点に鑑み完成されたものであり、その目的は、電解質部材を収納可能な、小型で、堅牢な燃料電池用容器であり、また、ガスの均等供給・燃料電池容器内の温度勾配の均一化・高効率な電気接続を図ることができる信頼性のある燃料電池用容器およびそれを用いた燃料電池を提供することにある。

#### [0019]

## 【課題を解決するための手段】

本発明の第1の燃料電池用容器は、板状の固体電解質の下側主面に第1電極および上側主面に第2電極がそれぞれ前記固体電解質が周囲に張り出すように形成された電解質部材の少なくとも前記第1電極を内部に収容するとともに外周部に前記固体電解質の張出部を載置する載置部を有する第1凹部を上面に有するセラミックスから成る基体と、前記電解質部材の前記下側主面に対向する前記第1凹部の底面から前記基体の外面にかけて形成された第1流体流路と、前記電解質部材の前記第1電極に対向する前記第1凹部の底面に一端が配設され、他端が前記基体の外面に導出された第1配線導体と、前記基体の前記第1凹部の周囲の上面に前記第1凹部を覆って取着される、前記第2電極を収容するとともに外周部に前記張出部に当接して前記載置部との間に前記張出部を挟持する当接部を有する第2凹部を下面に有する、前記第1凹部を気密に封止する蓋体と、前記電解質部材の前記上側主面に対向する前記蓋体の下面から前記蓋体の外面にかけて形成された第2流体流路と、前記電解質部材の前記第2電極に対向する前記蓋体の下面に一端が配設され、他端が前記蓋体の外面に導出された第2配線導体とを具備す

7/

ることを特徴とするものである。

## [0020]

また、本発明の第2の燃料電池用容器は、板状の固体電解質の下側主面に第1電極および上側主面に第2電極がそれぞれ前記固体電解質が周囲に張り出すように形成された電解質部材の少なくとも前記第1電極を内部に収容するとともに外周部に前記固体電解質の張出部を載置する載置部を有する凹部を上面に有するセラミックスから成る基体と、前記電解質部材の前記下側主面に対向する前記凹部の底面から前記基体の外面にかけて形成された第1流体流路と、前記電解質部材の前記第1電極に対向する前記凹部の底面に一端が配設され、他端が前記基体の外面に導出された第1配線導体と、前記基体の前記凹部の周囲の上面に前記凹部を覆って取着される、前記凹部を気密に封止する蓋体と、前記電解質部材の前記上側主面に対向する前記蓋体の下面から前記蓋体の外面にかけて形成された第2流体流路と、前記電解質部材の前記第2電極に対向する前記蓋体の下面に一端が配設され、他端が前記蓋体の外面に導出された第2配線導体とを具備することを特徴とするものである。

#### $[0\ 0\ 2\ 1]$

本発明の燃料電池は、上記各構成の本発明の第1または第2の燃料電池用容器の前記載置部に電解質部材を載置して、この電解質部材の前記下側および上側主面を前記第1および第2流体流路との間でそれぞれの流体がやりとり可能なように配置するとともに、前記第1および第2電極を前記第1および第2配線導体にそれぞれ電気的に接続し、前記基体の前記第1凹部または前記凹部の周囲の上面に前記第1凹部または前記凹部を覆って前記蓋体を取着して成ることを特徴とするものである。

# [0022]

本発明の第1および第2の燃料電池用容器によれば、下側および上側主面にそれぞれ第1および第2電極を有する電解質部材を収容する第1凹部または凹部を上面に有するセラミックスから成る基体と、この基体の第1凹部または凹部の周囲の上面に第1凹部または凹部を覆って取着される、第1凹部または凹部を気密に封止する蓋体とを具備していることから、燃料電池用容器内を気密に封止する

ことで、気体等の流体の漏れがなく、この容器の他にパッケージ等の容器を設ける必要がないので、効率良く動作させることができる燃料電池を得ることができるとともに、小型化にも有効なものとなる。また、第1凹部または凹部を上面に有するセラミックスから成る基体とこの第1凹部または凹部を封止する蓋体とで形成される箱体内に複数の電解質部材を収納して燃料電池とすることができるので、電解質部材が容器の外部に露出して損傷を受けたりすることがなく、燃料電池全体としての機械的信頼性が向上する。また、第1凹部または凹部および蓋体で構成される容器内部に一端が配設された第1および第2配線導体の他には電解質部材自体に無用な電気的接触をしないで済むので、信頼性および安全性の高い燃料電池を得ることができる。さらに、燃料電池用容器の構成材料としてセラミックスを用いたことにより、各種のガスを始めとする流体に対する耐食性に優れる燃料電池を得ることができる。

## [0023]

また、電解質部材の下側主面に対向する第1凹部または凹部の底面から基体の外面にかけて形成された第1流体流路と、電解質部材の上側主面に対向する蓋体の下面から蓋体の外面にかけて形成された第2流体流路とを具備していることから、複数のそれぞれの流体流路は、電解質部材を挟んで、それぞれ対向する内壁面に設けられているため、電解質部材へ供給される流体の均一供給性を向上させることができる。このような流体経路によれば、流体が電解質部材に対して垂直に流れるため、例えば、流体が水素ガスと空気(酸素)ガスとの場合に、電解質部材が下側および上側主面にそれぞれ有する第1および第2電極に供給される各ガス分圧が下がることはなく、所定の安定した出力電圧を得ることができるという効果がある。さらに、供給される流体の圧力、例えばガス分圧が安定するため、燃料電池用容器の内部温度の分布が均一化され、その結果、電解質部材に生じる熱応力を抑制することができ、燃料電池の信頼性を向上させることができる。

#### [0024]

さらにまた、それぞれの流体流路は基体と蓋体とに形成されるため、各流路の 密閉性に優れ、また固体電解質の張出部を基体上面の第1凹部または凹部の外周 部に設けられた載置部に載置するため、電解質部材により第1流体流路と第2流 体流路とが隔絶される構造となり、2種類の原料流体(例えば酸素ガスと水素ガスもしくはメタノール等)が混合してしまうことによって燃料電池としての機能が発現されなくなるようなことがなく、また、可燃性の流体が高温で混合された後に引火・爆発を起こす危険性もないので、安全な燃料電池を提供することができる。

# [0025]

また、本発明の燃料電池によれば、本発明の第1または第2の燃料電池用容器の載置部に電解質部材を載置して、この電解質部材の下側および上側主面を第1および第2流体流路との間でそれぞれの流体がやりとり可能なように配置するとともに、第1および第2電極を第1および第2配線導体にそれぞれ電気的に接続し、基体の第1凹部または凹部の周囲の上面に第1凹部または凹部を覆って蓋体を取着して成ることから、以上のような本発明の燃料電池用容器による特長を備えた、小型・堅牢で、ガスの均等供給・燃料電池容器内の温度勾配の均一化・高効率な電気接続・原料流体の混合防止を図ることができる信頼性のある燃料電池を得ることができる。

#### [0026]

従って、本発明の燃料電池用容器および燃料電池によれば、コンパクト性・簡便性・安全性に優れ、流体の均等供給・高効率な電気接続により、長期にわたり 安定して作動させることができる燃料電池を提供することができる。

### [0027]

#### 【発明の実施の形態】

次に、本発明を添付図面に基づき詳細に説明する。

#### [0028]

図1は本発明の第1の燃料電池用容器およびそれを用いた燃料電池について、 図2は本発明の第2の燃料電池用容器およびそれを用いた燃料電池について、それぞれ実施の形態の一例を示す断面図である。これらの図において、1・21は燃料電池、2・22は燃料電池用容器、3・23は電解質部材、4・24は第1電極、5・25は第2電極、6・26は基体、7・27は蓋体、8・28は第1流体流路、9・29は第2流体流路、10・30は第1配線導体、11・31は第2配線導体、12・32は載置 部、13は当接部、14・34は張出部である。

[0029]

電解質部材3・23は、板状の固体電解質である例えばイオン導電膜(交換膜)の両主面上に、下側主面に形成された第1電極4・24および上側主面に形成された第2電極5・25にそれぞれ対向するように、アノード側電極となる燃料極(図示せず)と、カソード側電極となる空気極(図示せず)とが一体的に形成されている。そして、電解質部材3・23で発電された電流を第1電極4・24および第2電極5・25へ流し、外部へ取り出すことができるものとなっている。

[0030]

このような電解質部材 3 ・23のイオン導電膜(交換膜)は、パーフルオロカーボンスルフォン酸樹脂、例えばナフィオン(商品名、デュポン社製)等のプロトン伝導性のイオン交換樹脂により構成されている。また、燃料極および空気極は、多孔質状態のガス拡散電極であり、多孔質触媒層とガス拡散層の両方の機能を兼ね備えるものである。これらの燃料極および空気極は、白金・パラジウムあるいはこれらの合金等の触媒を担持した導電性微粒子、例えばカーボン微粒子をポリテトラフルオロエチレンのような疎水性樹脂結合剤により保持した多孔質体によって構成されている。

[0031]

電解質部材3・23の下側主面の第1電極4・24および上側主面の第2電極5・25は、白金や白金ールテニウム等の触媒微粒子の付いた炭素電極を電解質部材3・23上にホットプレスする方法、または、白金や白金ールテニウム等の触媒微粒子の付いた炭素電極材料と電解質材料を分散した溶液との混合物を電解質上に塗布または転写する方法等により形成される。このとき、電解質の周縁部には第1電極4・24および第2電極5・25は形成されず、張出部14・34が形成される。

[0032]

本発明の第1の燃料電池用容器2および第2の燃料電池用容器22は、第1凹部を有する基体6または凹部を有する基体26と、第2凹部を有する蓋体7または蓋体27とから成り、電解質部材3・23を第1凹部および第2凹部の内部、または凹部の内部に搭載して気密に封止する役割を持ち、酸化アルミニウム(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

)質焼結体・ムライト( $3A1_2O_3$ ・ $2SiO_2$ )質焼結体・炭化珪素(SiC)質焼結体・窒化アルミニウム(AIN)質焼結体・窒化珪素( $Si_3N_4$ )質焼結体・ガラスセラミックス焼結体等のセラミックス材料で形成されている。

#### [0033]

## [0034]

#### [0035]

燃料電池用容器 2・22は、第1 凹部を有する基体 6 または凹部を有する基体 26 と、第 2 凹部を有する蓋体 7 または蓋体 27 とから成り、基体 6・26の第 1 凹部または凹部の周囲に第 1 凹部または凹部を覆って蓋体 7・27を取着することによって第 1 凹部または凹部を気密に封止するため、半田や銀ろう等の金属接合材料での接合、エポキシ等の樹脂材料での接合、第 1 凹部または凹部の周囲の上面に鉄合金等で作られたシールリング等を接合してシームウェルドやエレクトロンビームやレーザ等で溶接する方法等によって、蓋体 7・27が基体 6・26に取着される

## [0036]

基体 6・26および蓋体 7・27は、それぞれ厚みを薄くし、本発明の第1の燃料電池 1 および第2の燃料電池21の低背化を可能とするためには、機械的強度である曲げ強度が200MP a 以上であることが好ましい。

## [0037]

基体 6・26および蓋体 7・27は、例えば相対密度が95%以上の緻密質からなる酸化アルミニウム質焼結体で形成されていることが好ましい。その場合であれば、例えば、まず酸化アルミニウム粉末に希土類酸化物粉末や焼結助剤を添加・混合して、酸化アルミニウム質焼結体の原料粉末を調整する。次いで、この酸化アルミニウム質焼結体の原料粉末に有機バインダおよび分散媒を添加・混合してペースト化し、このペーストからドクターブレード法によって、あるいは原料粉末に有機バインダを加え、プレス成形・圧延成形等によって、所定の厚みのグリーンシートを作製する。そして、このグリーンシートに対して、金型による打ち抜き・マイクロドリル・レーザ等により、第1流体流路 8・28および第2流体流路9・29としての貫通穴、ならびに第1配線導体10・30および第2配線導体11・31を配設するための貫通孔を形成する。

#### [0038]

第1配線導体10・30および第2配線導体11・31は、酸化を防ぐために、タングステンもしくはモリブデンまたはこれらの合金で形成されているのが好ましい。その場合であれば、例えば、無機成分としてタングステンもしくはモリブデン粉末100質量部に対して、A12O3を3~20質量部,Nb2O5を0.5~5質量部の割合で添加してなる導体ペーストを調製する。この導体ペーストをグリーンシートの貫通孔内に充填して、貫通導体としてのヴィア導体を形成する。

#### [0039]

これらの導体ペースト中には、基体 6・26や蓋体 7・27のセラミックスとの密着性を高めるために、酸化アルミニウム粉末や、基体 6・26や蓋体 7・27を形成するセラミックス成分と同一の組成物粉末を、例えば0.05~2体積%の割合で添加することも可能である。

#### [0040]

なお、基体 6 ・26や蓋体 7 ・27の表層および内層への第 1 配線導体10・30およ

び第2配線導体11・31の形成は、貫通孔へ導体ペーストを充填してヴィア導体を 形成する前後あるいはそれと同時に、同様の導体ペーストをグリーンシートに対 しスクリーン印刷・グラビア印刷等の方法で所定パターンに印刷塗布して形成す る。

#### [0041]

その後、導体ペーストを印刷し充填した所定枚数のシート状成形体を位置合わせして積層圧着した後、この積層体を、例えば非酸化性雰囲気中にて、焼成最高温度が $1200\sim1500$  $\mathbb{C}$ の温度で焼成して、目的とするセラミックスの基体  $6\cdot26$  ・ 26 ・

## [0042]

また、セラミックスから成る基体 6・26や蓋体 7・27は、その厚みを0.2mm 以上とすることが好ましい。厚みが0.2mm未満では、強度が不足しがちなため 、基体 6・26に蓋体 7・27を取着したときに発生する応力により、基体 6・26お よび蓋体 7・27に割れ等が発生しやすくなる傾向がある。他方、厚みが 5 mmを 超えると、薄型化・低背化が困難となるため、小型携帯機器に搭載する燃料電池 としては不適切となり、また、熱容量が大きくなるため、電解質部材 3・23の電 気化学反応条件に相当する適切な温度にすばやく設定することが困難となる傾向 がある。

## [0043]

また、図1に示す本発明の第1の燃料電池用容器2の例では、基体6の第1凹部の形状はいわゆる2段凹部であり、蓋体7の第2凹部の形状は1段凹部であるが、これら凹部の形状を逆にして、基体6の第1凹部の形状を1段凹部とし、蓋体7の第2凹部の形状を2段凹部としてもよい。

#### [0044]

また、図2に示す本発明の第2の燃料電池用容器22の例では、基体26の凹部の形状はいわゆる2段凹部であり、蓋体27にも凹部を設けており、その形状は1段凹部であるが、図4に図2と同様の断面図で示す実施の形態の他の例のように、基体26'の凹部の形状、および蓋体27'に設けた凹部の形状を共に1段凹部としたり、図5に図2と同様の断面図で示す実施の形態のさらに他の例のように、基

体26"の凹部の形状を1段凹部とし、蓋体27"は凹部を有しない平板形状としたりして、基体26'・26"や蓋体27'・27"を製造が容易なものにしてもよい。なお、図4および図5において図2と同様の箇所には同じ符号を付してあるが、21'・21"は燃料電池、22'・22"は燃料電池用容器、23は電解質部材、24は第1電極、25は第2電極、26'・26"は基体、27'・27"は蓋体、28は第1流体流路、29は第2流体流路、30は第1配線導体、31は第2配線導体、32は載置部、34は張出部である。

## [0045]

第1配線導体10・30および第2配線導体11・31は、それぞれ電解質部材3・23の第1電極4・24および第2電極5・25に電気的に接続されて、電解質部材3・23で発電された電流を燃料電池用容器2・22の外部へ取り出すための導電路として機能する。なお、以下の説明は図4および図5に示す本発明の第2の燃料電池用容器およびそれを用いた燃料電池の他の例についても同じであるが、それらの参照符号の引用は省略する。

## [0046]

第1配線導体10・30は、基体6・26の第1凹部または凹部の底面の電解質部材3・23の第1電極4・24に対向する部位に一端が配設され、他端が基体6・26の外面に導出されて形成されている。このような第1配線導体10・30は、前述のように基体6・26と一体的に形成され、第1配線導体10・30を第1電極4・24に接触させやすいように基体6・26の第1凹部または凹部の底面より、10μm以上高くするように形成するのが望ましい。この高さを得るためには、前述したように導体ペーストを印刷塗布して形成する際に、印刷条件を厚くするように設定すればよい。また、第1配線導体10・30は第1電極4・24に対向させて複数配置し、第1配線導体10・30による電気損失を減少させることが望ましく、第1配線導体10・30の基体6・26の貫通部については \$50μm以上の径とすることが好ましい

#### [0047]

また、第2配線導体11・31は、蓋体7・27の下面の電解質部材3・23の第2電極5・25に対向する部位に一端が配設され、他端が蓋体7・27の外面に導出され

て形成されている。このような第2配線導体 $11\cdot31$ も、第1配線導体 $10\cdot30$ と同様に、蓋体 $7\cdot27$ と一体的に形成され、第2配線導体 $11\cdot31$ を第2電極 $5\cdot25$ に接触させやすいように蓋体 $7\cdot27$ の下面またはこれに設けた凹部の底面より、10  $\mu$  m以上高くするように形成するのが望ましい。この高さを得るためには、前述したように導体ペーストを印刷塗布して形成する際に、印刷条件を厚くするように設定すればよい。また、第2配線導体 $11\cdot31$ は第2電極 $5\cdot25$ に対向させて複数配置し、第2配線導体 $11\cdot31$ による電気損失を減少させることが望ましく、第2配線導体 $11\cdot31$ の蓋体 $7\cdot27$ の貫通部については $\phi50$  $\mu$  m以上の径とすることが好ましい。

## [0048]

これら第1配線導体10・30および第2配線導体11・31には、その露出する表面にニッケルから成る良導電性で、かつ耐蝕性およびロウ材との濡れ性が良好な金属をメッキ法により被着させておくと、第1配線導体10・30および第2配線導体11・31と、第1配線導体10・30および第2配線導体11・31ならびに外部電気回路との電気的接続を良好とすることができる。従って、第1配線導体10・30および第2配線導体11・31は、その露出する表面にニッケルから成る良導電性で、かつ耐蝕性およびロウ材との濡れ性が良好な金属をメッキ法により被着させておくことが好ましい。

#### [0049]

そして、これら第1および第2配線導体10・30・11・31と第1および第2電極4・24・5・25との電気的な接続は、基体6・26と蓋体7・27とで電解質部材3・23を挟み込むように収容することによって、第1および第2配線導体10・30・11・31と第1および第2電極4・24・5・25とを圧着接触させて電気的接続させる等の構成によって行なえばよい。

#### [0050]

また、第1電極4・24および第2電極5・25に対向する基体6・26の第1凹部 または凹部の底面および蓋体7・27の下面には、それぞれ第1流体流路8・28お よび第2流体流路9・29が配置されており、第1流体流路8・28は基体6・26の 外面にかけて、また第2流体流路9・29は蓋体7・27の外面にかけて形成されて いる。これら第1および第2流体流路8・28・9・29は、それぞれ基体6・26や 蓋体7・27に形成した貫通穴あるいは溝によって、燃料ガス例えば水素に富む改質ガス、あるいは酸化剤ガス例えば空気等の、電解質部材3・23へ供給される流体の通路として、あるいは反応で生成される水等の、反応後に電解質部材3・23 から排出される流体の通路として設けられている。

#### $[0\ 0\ 5\ 1]$

第1流体流路8・28および第2流体流路9・29として基体6・26および蓋体7・27に形成される貫通穴あるいは溝は、電解質部材3・23に均等に燃料ガスや酸化剤ガス等の流体が供給されるように、燃料電池1・21の仕様に応じて、貫通穴の径や数、あるいは溝の幅・深さ・配置を決めればよい。

## [0052]

本発明の燃料電池用容器 2・22および燃料電池 1・21においては、第 1 流体流路 8・28および第 2 流体流路 9・29は、好適には、電解質部材 3・23に均一な圧力で流体を流すため、  $\phi$  0.1mm以上の穴径とし、間隔を一定にして配置するようにするとよい。

#### $[0\ 0\ 5\ 3]$

このように電解質部材 3 ・23の第 1 電極 4 ・24が形成された下側主面に対向させて第 1 流体流路 8 ・28を、第 2 電極 5 ・25が形成された上側主面に対向させて第 2 流体流路 9 ・29を形成したことによって、電解質部材 3 ・23の下側および上側主面と第 1 および第 2 流体流路 8 ・28・9・29との間で流体がやりとり可能となり、その流体がそれぞれの流路を通して供給あるいは排出されることとなる。そして、例えば流体としてガスを供給する場合であれば、電解質部材 3 ・23の第 1 電極 4 ・24および第 2 電極 5 ・25にそれぞれ供給されるガス分圧が下がることをなくすことができ、所定の安定した出力電圧を得ることができる。さらに、供給されるガス分圧が安定するため、燃料電池 1・21の内部圧力が均一化され、その結果、電解質部材 3 ・23に生じる熱応力を抑制することができるので、燃料電池 1・21の信頼性を向上させることができる。

#### [0054]

図1に示すような本発明の第1の燃料電池用容器2において電解質部材3は、

基体6の上面の第1凹部の外周部に設けられた載置部12と蓋体7の下面の第2凹部の外周部に設けられた当接部13とで張出部14を挟持されて収納される。このため電解質部材3により第1流体流路8と第2流体流路9とが隔絶される構造となり、2種類の原料流体(例えば酸素ガスと水素ガスもしくはメタノール等)が混合してしまうことによって燃料電池としての機能が発現されなくなるようなことがなく、また、可燃性の流体が高温で混合された後に引火・爆発を起こす危険性もないので、安全な燃料電池を提供することができる。また、基体6の載置部12と蓋体7の当接部13とで電解質部材3の張出部14を挟持する構造であるので、電解質部材3を容易に燃料電池用容器2の内部に固定して収納することが可能である。

## [0055]

載置部12と当接部13との間隔は、電解質部材3を燃料電池用容器2に確実に固定し、また第1流体流路8と第2流体流路9との間の気密性を確実なものとするために、電解質部材3の張出部14の厚み以下にしておくとよい。また、第1凹部の開口部の寸法を電解質部材3の外形寸法と略同一の寸法にしておくと、電解質部材3を基体6に載置する際の位置合わせが容易となるので、好ましいものとなる。さらに、第1流体流路8と第2流体流路9との間の気密性を上げるために、載置部12および当接部13の少なくとも一方と張出部14との間にシール材を配置してもよい。このシール材が接着性を有するものであれば、電解質部材3の固定がより確実なものとなる。

#### [0056]

図2に示すような本発明の第2の燃料電池用容器22において電解質部材23は、基体26の上面の凹部の外周部に設けられた載置部32に載置されて収納される。このため電解質部材23により第1流体流路28と第2流体流路29とが隔絶される構造となり、2種類の原料流体(例えば酸素ガスと水素ガスもしくはメタノール等)が混合してしまうことによって燃料電池としての機能が発現されなくなるようなことがなく、また、可燃性の流体が高温で混合された後に引火・爆発を起こす危険性もないので、安全な燃料電池を提供することができる。また、厚みの薄い電解質部材23の張出部34に凹部の深さを合わせる必要がないので、基体26の製造が

容易になる。

## [0057]

電解質部材 3・23の載置部12・32への載置は、それらの間にシール性を有する接着剤を介して載置すると、電解質部材 3・23の固定および第 1 流体流路 8・28と第 2 流体流路 9・29との間の気密性が確実なものとなるのでよい。このような接着剤としては、フッ素系・シリコーン系・エチレンプロピレン系・ポリウレタン系・ポリサルファイド系・ブチル系・エポキシ系等のゴム材料や樹脂材料が挙げられる。

#### [0058]

以上の構成により、図1および図2に示すような、電解質部材3・23を収納可能な、小型で堅牢な本発明の第1および第2の燃料電池用容器2・22が得られ、 高効率制御が可能な本発明の燃料電池1・21が得られる。

## [0059]

なお、本発明は以上の実施の形態の例に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲であれば、種々の変更を行なっても何ら差し支えない。例えば、第1流体流路や第2流体流路については、燃料電池全体を薄型化するため、基体または蓋体の側面からの流入口を設けるようにしてもよい。これによれば、特に携帯電子機器用として小型化を図る上で有効となる。さらに、第1および第2配線導体については、基体および蓋体の外面に導出される他端を、それぞれ同じ側の側面に引き出すように配設してもよい。これによれば、燃料電池の一方側面に配線や流路等をまとめることができ、小型化と外部への接合部の保護とが容易となり、信頼性の高い設計が可能となるとともに、長期間安定した作動が可能な燃料電池となる。

#### [0060]

また、基体の凹部の内部には、複数の電解質部材を収容してこれらを第1および第2配線導体により電気的に接続して全体として高電圧あるいは大電流の出力を得るようにしてもよい。

#### $[0\ 0\ 6\ 1]$

また、図6に本発明の第1の燃料電池用容器およびそれを用いた燃料電池の実

施の形態の他の例を断面図で示すように、複数の第1凹部を有する基体6'の第 1 凹部のそれぞれに電解質部材3を収容するとともに、隣接する第1 凹部の端部 間にわたって第3配線導体15を配設し、複数の電解質部材3の第1電極4の間ま たは第1電極4と第2電極5との間を電気的に接続し、両端となる位置に配置さ れた電解質部材3に全体としての出力を取り出すように第1配線導体10および第 2配線導体11をそれぞれに電気的に接続するようにしてもよい。これによれば、 第1~第3配線導体10・11・15により3次元的に自由に配線ができるため、複数 の電解質部材3を任意に直列接続または並列接続することが可能となる。その結 果、全体の出力電圧および出力電流を効率よく調整することが可能となるため、 電解質部材3にて電気化学的に生成された電気を良好に外部に取り出すことがで きる燃料電池1'となる。この図6に示した構成は、図2,図4および図5に示 した本発明の第2の燃料電池用容器およびそれを用いた燃料電池に適用してもよ い。なお、図6において図1と同様の箇所には同じ符号を付してあるが、1.は 燃料電池、2′は燃料電池用容器、3は電解質部材、4は第1電極、5は第2電 極、6'は基体、7'は蓋体、8は第1流体流路、9は第2流体流路、10は第1 配線導体、11は第2配線導体、12は載置部、14は張出部であり、15は第3配線導 体である。

[0062]

## 【発明の効果】

本発明の第1および第2の燃料電池用容器によれば、下側および上側主面にそれぞれ第1および第2電極を有する電解質部材を収容する第1凹部または凹部を上面に有するセラミックスから成る基体と、この基体の第1凹部または凹部の周囲の上面に第1凹部または凹部を覆って取着される、第1凹部または凹部を気密に封止する蓋体とを具備していることから、燃料電池用容器内を気密に封止することで、気体等の流体の漏れがなく、この容器の他にパッケージ等の容器を設ける必要がないので、効率良く動作させることができる燃料電池を得ることができるともに、小型化にも有効なものとなる。また、第1凹部または凹部を上面に有するセラミックスから成る基体とこの第1凹部または凹部を封止する蓋体とで形成される箱体内に複数の電解質部材を収納して燃料電池とすることができるの

で、電解質部材が容器の外部に露出して損傷を受けたりすることがなく、燃料電池全体としての機械的信頼性が向上する。また、第1凹部または凹部および蓋体で構成される容器内部に一端が配設された第1および第2配線導体の他には電解質部材自体に無用な電気的接触をしないで済むので、信頼性および安全性の高い燃料電池を得ることができる。さらに、燃料電池用容器の構成材料としてセラミックスを用いたことにより、各種のガスを始めとする流体に対する耐食性に優れる燃料電池を得ることができる。

#### [0063]

また、電解質部材の下側主面に対向する第1凹部または凹部の底面から基体の外面にかけて形成された第1流体流路と、電解質部材の上側主面に対向する蓋体の下面から蓋体の外面にかけて形成された第2流体流路とを具備していることから、複数のそれぞれの流体流路は、電解質部材を挟んで、それぞれ対向する内壁面に設けられているため、電解質部材へ供給される流体の均一供給性を向上させることができる。このような流体経路によれば、流体が電解質部材に対して垂直に流れるため、例えば、流体が水素ガスと空気(酸素)ガスとの場合に、電解質部材が下側および上側主面にそれぞれ有する第1および第2電極に供給される各ガス分圧が下がることはなく、所定の安定した出力電圧を得ることができるという効果がある。さらに、供給される流体の圧力、例えばガス分圧が安定するため、燃料電池用容器の内部温度の分布が均一化され、その結果、電解質部材に生じる熱応力を抑制することができ、燃料電池の信頼性を向上させることができる。

### [0064]

さらにまた、それぞれの流体流路は基体と蓋体とに形成されるため、各流路の 密閉性に優れ、また固体電解質の張出部を基体上面の第1凹部または凹部の外周 部に設けられた載置部に載置するため、電解質部材により第1流体流路と第2流体流路とが隔絶される構造となり、2種類の原料流体(例えば酸素ガスと水素ガスもしくはメタノール等)が混合してしまうことによって燃料電池としての機能が発現されなくなるようなことがなく、また、可燃性の流体が高温で混合された後に引火・爆発を起こす危険性もないので、安全な燃料電池を提供することができる。

## [0065]

また、本発明の燃料電池によれば、本発明の第1または第2の燃料電池用容器の載置部に電解質部材を載置して、この電解質部材の下側および上側主面を第1および第2流体流路との間でそれぞれの流体がやりとり可能なように配置するとともに、第1および第2電極を第1および第2配線導体にそれぞれ電気的に接続し、基体の第1凹部または凹部の周囲の上面に第1凹部または凹部を覆って蓋体を取着して成ることから、以上のような本発明の燃料電池用容器による特長を備えた、小型・堅牢で、ガスの均等供給・燃料電池容器内の温度勾配の均一化・高効率な電気接続・原料流体の混合防止を図ることができる信頼性のある燃料電池を得ることができる。

### [0066]

従って、本発明の燃料電池用容器および燃料電池によれば、コンパクト性、簡便性・安全性に優れ、ガスの均等供給・高効率な電気接続により、長期にわたり 安定して作動させることができる燃料電池を提供することができた。

## 【図面の簡単な説明】

#### 【図1】

本発明の第1の燃料電池用容器およびそれを用いた本発明の燃料電池の実施の 形態の一例を示す断面図である。

## 図2

本発明の第2の燃料電池用容器およびそれを用いた本発明の燃料電池の実施の 形態の一例を示す断面図である。

## 【図3】

従来の燃料電池の例を示す断面図である。

#### 【図4】

本発明の第2の燃料電池用容器およびそれを用いた本発明の燃料電池の実施の 形態の他の例を示す断面図である。

#### 図5

本発明の第2の燃料電池用容器およびそれを用いた本発明の燃料電池の実施の 形態のさらに他の例を示す断面図である。

# 【図6】

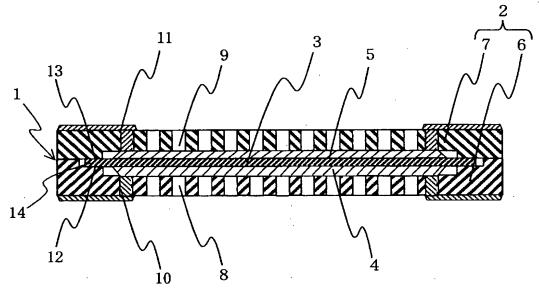
本発明の第1の燃料電池用容器およびそれを用いた本発明の燃料電池の実施の 形態の他の例を示す断面図である。

## 【符号の説明】

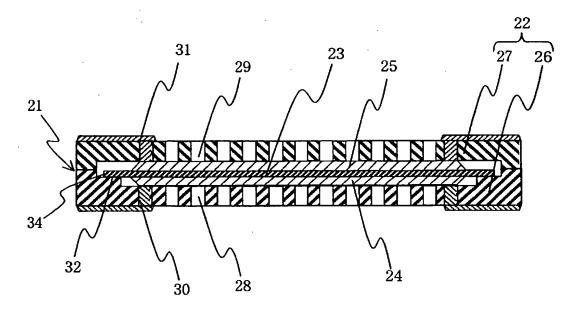
- 1:燃料電池
- 2:燃料電池用容器
- 3:電解質部材
- 4:第1電極
- 5:第2電極
- 6:基体
- 7:蓋体
- 8:第1流体流路
- 9:第2流体流路
- 10:第1配線導体
- 11:第2配線導体
- 12: 載置部
- 13: 当接部
- 14:張出部
- 15:第3配線導体

# 【書類名】 図面

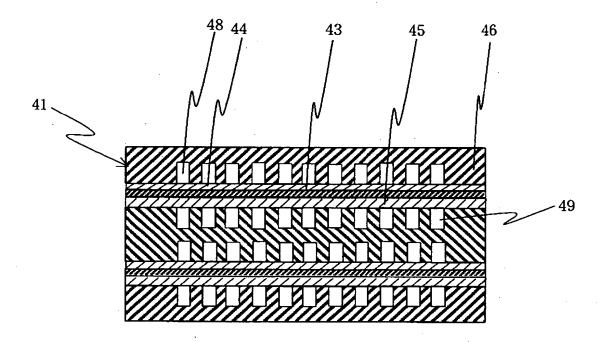
# 【図1】



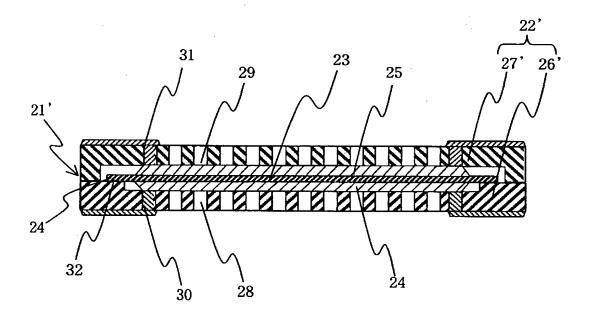
【図2】



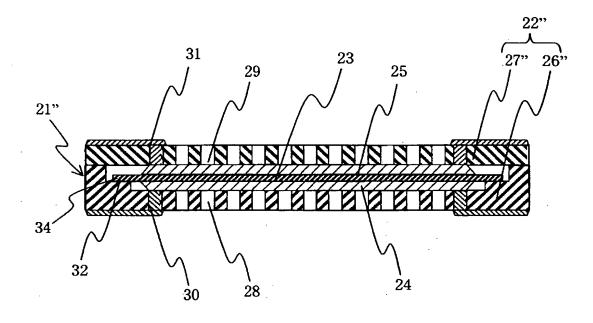
【図3】



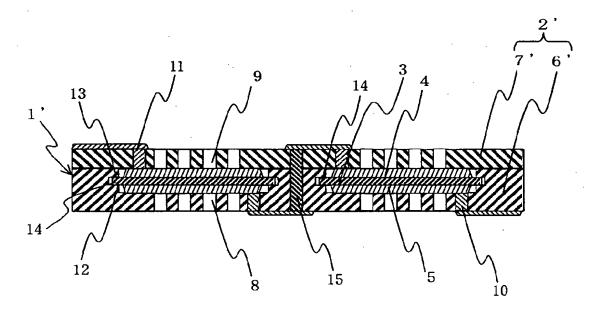
【図4】



【図5】



【図6】



## 【書類名】 要約書

## 【要約】

【課題】 携帯電子機器用の燃料電池として、電解質部材を収納可能な、小型で堅牢であり、ガスの均等供給・容器内の温度勾配の均一化・高効率な電気接続が可能な信頼性のある燃料電池用容器および燃料電池を提供すること。

【解決手段】 第1および第2電極4・5を有する電解質部材3を収容する、外周部に載置部12を有する凹部を有する基体6と、電解質部材3に対向する凹部の底面から基体6外面にかけて形成された第1流体流路8と、第1電極4に対向する凹部底面に一端が配設され、他端が基体6外面に導出された第1配線導体10と、基体6の凹部の周囲の上面に取着される蓋体7と、電解質部材に対向する蓋体7下面から蓋体7外面にかけて形成された第2流体流路9と、第2電極5に対向する蓋体7下面に一端が配設され、他端が蓋体7外面に導出された第2配線導体11とを具備する燃料電池用容器2およびこれを用いた燃料電池1である。

## 【選択図】 図1

ページ: 1/E

# 認定・付加情報

特許出願の番号

特願2002-372362

受付番号

5 0 2 0 1 9 5 0 6 4 3

書類名

特許願

担当官

第五担当上席 0094

作成日

平成14年12月25日

<認定情報・付加情報>

【提出日】

平成14年12月24日

次頁無

# 特願2002-372362

## 出願人履歴情報

識別番号

7

[000006633]

1. 変更年月日

1990年 8月10日

[変更理由]

新規登録

住 所

京都府京都市山科区東野北井ノ上町5番地の22

氏 名

京セラ株式会社

2. 変更年月日

1998年 8月21日

[変更理由]

住所変更

住 所

京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地

氏 名

京セラ株式会社